(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



- 1 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1881 | 1

(43) 国際公開日 2002 年11 月7 日 (07.11.2002)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 02/088074 A1

(51) 国際特許分類⁷: C07C 323/42, 317/28, 317/40, C07D 213/64, A01N 37/22, 41/10, 43/40

(21) 国際出願番号:

PCT/JP02/04171

(22) 国際出願日:

2002 年4 月25 日 (25.04.2002)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願2001-129589 2001年4月26日(26.04.2001) JF

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日本農薬 株式会社 (NIHON NOHYAKU CO., LTD.) [JP/JP]; 〒 103-8236 東京都 中央区 日本橋 1 丁目 2番 5号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 中尾 勇美 (NAKAO,Hayami) [JP/JP]; 〒586-0021 大阪府 河内長野市 原町270 Osaka (JP). 原山 博人 (HARAYAMA,Hiroto) [JP/JP]; 〒586-0022 大阪府 河内長野市 本多町 5-6-305 Osaka (JP). 山口 実 (YAMAGUCHI,Minoru) [JP/JP]; 〒589-0008 大阪府 大阪狭山市 池尻自由丘 1-4-3-402 Osaka (JP). 遠西 正範 (TOHNISHI,Masanori) [JP/JP]; 〒599-8241 大阪府 堺市福田1040-1-408 Osaka (JP). 森本 雅之 (MORIMOTO,Masayuki) [JP/JP];

〒586-0024 大阪府 河内長野市 西之山町1-28-305 Osaka (JP). 藤岡 伸祐 (FUJIOKA,Shinsuke) [JP/JP]; 〒 586-0037 大阪府 河内長野市 上原町474-1-103 Osaka (JP).

- (74) 代理人: 浅村 皓 . 外(ASAMURA,Kiyoshi et al.); 〒 100-0004 東京都 千代田区 大手町2丁目2番1号 新大手町ビル331 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

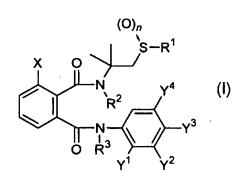
添付公開書類:

- 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される 各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語 のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PHTHALAMIDE DERIVATIVES, INSECTICIDES FOR AGRICULTURAL AND HORTICULTURAL USE AND METHOD FOR APPLICATION THEREOF

(54) 発明の名称: フタルアミド誘導体及び農園芸用殺虫剤並びにその使用方法



(57) Abstract: Phthalamide derivatives represented by the general formula (I); insecticides for agricultural and horticultural use, containing the derivatives as the active ingredient; and a method for application thereof: (I) wherein R^1 , R^2 and R^3 are each independently hydrogen, C_{1-6} alkyl, C_{3-6} alkenyl, or C_{3-6} alkynyl; X and Y¹ are each independently halogeno; Y² and Y⁴ are each independently hydrogen, halogeno, cyano, C_{1-6} alkyl, or the like; Y³ is cyano, C_{1-6} alkyl, or the like; and n is an integer of 0 or 2.

/続葉有/

(57) 要約:

本発明は、一般式 (1)

$$X O N S-R^1$$

$$R^2 Y^4$$

$$O R^3$$

$$Y^1 Y^2$$

$$Y^3$$

(式中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は同一又は異なっても良く、水素原子、 C_1 - C_6 アルキル基、 C_3 - C_6 アルケニル基又は C_3 - C_6 アルキニル基を示し、X及び Y^1 は同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、 Y^2 及び Y^4 は同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、 C_1 - C_6 アルキル基等を示し、 Y^3 はシアノ基、 C_1 - C_6 アルキル基等を示し、 Y^3 はシアノ基、 Y^3 はからない方式を表されるフタルアミド誘導体及び該化合物を有効成分として含有する、農園芸用殺虫剤並びにその使用方法に関する。

明 細 書

フタルアミド誘導体及び農園芸用殺虫剤並びにその使用方法

5 技術分野

本発明はフタルアミド誘導体及び該化合物を有効成分とする農園芸用殺虫剤並びにその使用方法に関するものである。

背景技術

特開平11-240857号公報及び特開2001-131141号公報には、 10 本発明のフタルアミド誘導体と類似した化合物が農園芸用殺虫剤として有用であることが記載されている。しかしながら、これらの公報には、本発明化合物についての実施例、物性等は記載されていない。

農業及び園芸等の作物生産において、害虫等による被害は今なお大きく、既存薬に対する抵抗性害虫の発生等の要因から新規な農園芸用薬剤、特に農園芸用殺 5 虫剤の開発が望まれている。又、就農者の老齢化等により各種の省力的施用方法が求められるとともに、これらの施用方法に適した性格を有する農園芸用薬剤の 創出が求められている。

発明の開示

本発明者等は新規な農園芸用薬剤を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、本発明 20 の一般式(I) で表されるフタルアミド誘導体が文献未記載の新規化合物であり、 特開平11-240857号公報及び特開2001-131141号公報に記載 の化合物に対し、低薬量で優れた殺虫効果を示し、特に土壌等に処理することに より、根からの高い吸収移行作用を示す優れた農園芸用殺虫剤であることを見いだし、本発明を完成させたものである。

25 即ち、本発明は

一般式(I)

$$\begin{array}{c}
(O)_{n} \\
X \quad O \quad S - R^{1} \\
N \quad Y^{4} \quad Y^{3} \\
O \quad R^{3} \quad Y^{1} \quad Y^{2}
\end{array}$$

(式中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は同一又は異なっても良く、水素原子、 C_1 - C_6 ア ルキル基、 C_3 - C_6 アルケニル基又は C_3 - C_6 アルキニル基を示し、X及びY¹は 10 同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、 Y^2 及び Y^4 は同一又は異なって も良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、C₁-C₆アルキル基、ハロC₁-C₆ アルキル基、C₁-C₆アルコキシ基、ハロ C₁-C₆アルコキシ基、ハロ C₁-C₆ア ルキルチオ基、ハロ C₁-C₆アルキルスルフィニル基又はハロ C₁-C₆アルキル スルホニル基を示し、 Y^3 はシアノ基、 C_1 - C_6 アルキル基、ハロ C_1 - C_2 アルキル 15 基、C₁-C₆アルコキシ基、ハロ C₁-C₆アルコキシ基、 ハロ C₁-C₆アルコキシ ハロ C₁-C₆アルコキシ基、C₁-C₆アルキルチオ基、ハロ C₁-C₆アルキルチオ 基、C₁-C₆アルキルスルフィニル基、ハロ C₁-C₆アルキルスルフィニル基、C₁ $-C_6$ アルキルスルホニル基、ハロ C_1 - C_6 アルキルスルホニル基、同一又は異な っても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C₁-C₆アルキル基、ハロC₁ 20 $-C_6$ アルキル基、 C_1-C_6 アルコキシ基又はハロ C_1-C_6 アルコキシ基から選択さ れる1以上の置換基を有する置換フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲ ン原子、シアノ基、ニトロ基、 C₁-C₆アルキル基、ハロ C₁-C₆アルキル基、 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択される1以上の置換 基を有する置換フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ 25 基、ニトロ基、 C₁-C₆アルキル基、ハロ C₁-C₆アルキル基、 C₁-C₆アルコキ シ基又はハロ C₁-C₆アルコキシ基から選択される1以上の置換基を有する置換 ピリジルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ 基、 C₁-C₆アルキル基、ハロ C₁-C₆アルキル基、C₁-C₆アルコキシ基又はハ ロ C₁-C₆アルコキシ基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチ

オ基、又は、同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_1 - C_6 アルキル基、ハロ C_1 - C_6 アルキル基、 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択される 1 以上の置換基を有する置換ピリジルチオ基を示し、nは $0\sim2$ の整数を示す。但し、 R^2 及び R^3 が同時に水素原子を示し、

で表されるフタルアミド誘導体及び該化合物を有効成分として含有する農園芸用殺虫剤並びにその使用方法に関するものである。

本発明の化合物を有効成分とする農園芸用殺虫剤は水稲、果樹、野菜、その他 の作物及び花卉用を加害する各種農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等 15 の害虫防除に適する。

発明を実施するための形態

20

本発明のフタルアミド誘導体の一般式(I)の定義において、「ハロゲン原子」とは塩素原子、臭素原子、沃素原子又はフッ素原子を示し、「 C_1 - C_6 アルキル」とは、例えばメチル、エチル、n-プロピル、i-プロピル、n-ブチル、i-ブチル、s-ブチル、t-ブチル、n-ペンチル、n-ヘキシル等の直鎖又は分岐鎖状の炭素原子数 1 ~ 6 個のアルキル基を示し、「ハロ C_1 - C_6 アルキル」とは、同一又は異なっても良い 1 以上のハロゲン原子により置換された直鎖又は分岐鎖状の炭素原子数 1 ~ 6 個のアルキル基を示す。

本発明の一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体は、その構造式中に1つ 25 又は複数個の不斉中心を含む場合があり、2種以上の光学異性体及びジアステレ オマーが存在する場合もあり、本発明は各々の光学異性体及びそれらが任意の割 合で含まれる混合物をも全て包含するものである。又、本発明の一般式(I)で 表されるフタルアミド誘導体は、その構造式中に炭素ー炭素二重結合に由来する 2種の幾何異性体が存在する場合もあるが、本発明は各々の幾何異性体及びそれ らが任意の割合で含まれる混合物をも包含するものである。

本発明の一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体において、好ましい R^1 としては C_1 - C_6 アルキル基が挙げられ、好ましい R^2 としては水素原子が挙げられ、好ましい R^3 としては水素原子又は C_1 - C_4 アルキル基が挙げられる。nは 0 ~ 2 が挙げられる。好ましいXとしてはョウ素原子が挙げられる。好ましい Y^1 としては塩素原子が挙げられ、好ましい Y^2 としては水素原子又は塩素原子が挙げられ、好ましい Y^3 としてはハロ C_1 - C_2 アルキル基、ハロ C_1 - C_6 アルコキシ 基、ハロ C_1 - C_6 アルコキシハロ C_1 - C_6 アルコキシ基、置換フェノキシ基、置換ピリジルオキシ基が挙げられ、より好ましくはトリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、トリフルオロメトキシ基、ヘプタフルオロプロポキシ基が挙げられる。好ましい Y^4 としては水素原子が挙げられる。

以下に本発明の代表的な製造方法を図式的に示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

PCT/JP02/04171

(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、n、X、 Y^1 、 Y^2 、 Y^3 、 Y^4 は前記に同じくし、h a loはハロゲン原子を示す。)

一般式(VI)で表されるフタルイソイミド誘導体と一般式(V)で表されるアニリン誘導体とを酸又は塩基の存在下若しくは非存在下に、不活性溶媒中で反応 させることにより、一般式(IV)で表されるフタルアミド誘導体とし、該フタルアミド誘導体(IV)を脱ハロゲン化水素剤及び不活性溶媒の存在下に一般式(II)で表されるフタルアミド誘導体とし、該フタルアミド誘導体(II)を不活性溶媒の存在下に酸化剤と反応させることにより、一般式(II)で表されるフタルアミド誘導体とし、該フタルアミド誘導体(II)を不活性溶媒の存在下に酸化剤と反応させることにより、一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体を製造すること ができる。

 R^2 が水素原子の場合は、一般式(II)で表されるフタルアミド誘導体を経由することなく、一般式(IV)で表されるフタルアミド誘導体を不活性溶媒の存在下に酸化剤と反応させることにより、一般式(I) で表されるフタルアミド誘導体を製造することができる。

15 本発明の原料化合物である一般式 (VI) で表されるフタルイソイミド誘導体は 特開平11-240857号公報及び特開2001-131141号公報に記載 の製造方法に従って製造することができる。

(1). 一般式 (VI) →一般式(IV)

本反応は J. Med. Chem., <u>10</u>, 982 (1967) に記載の方法に 20 従って目的物を製造することができる。

本反応で使用する不活性溶媒としては、例えばテトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、メチル tーブチルエーテル、ジオキサン、クロロホルム、塩化メチレン、クロロベンゼン、トルエン、アセトニトリル、酢酸エチル、酢酸ブチル等を例示することができる。

25 本反応で使用できる酸としては、例えば酢酸、トリフルオロ酢酸等の有機酸類、 塩酸、硫酸等の無機酸類を例示することができ、その使用量は、一般式(VI)で表 されるフタルイソイミド誘導体に対して触媒量乃至過剰モルの範囲から適宜選択 して使用すれば良い。塩基としては、例えばトリエチルアミン、ピリジン等の有 機塩基類、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム、水酸化ナトリ ウム等の無機塩基類を例示することができ、その使用量は、一般式(VI)で表されるフタルイソイミド誘導体に対して触媒量乃至過剰モルの範囲から適宜選択して使用すれば良い。

反応温度は0℃乃至使用する不活性溶媒の沸点域で行うことができ、反応時間 5 は反応規模、反応温度等により一定しないが、数分乃至48時間の範囲である。 反応終了後、目的物を含む反応系から常法に従って単離すれば良く、必要に応じ て再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造する ことができる。

(2). 一般式(IV)→一般式(II)

本反応で使用する不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、フルオロベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化芳香族炭化水素類、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、酢酸等の酸類、ジメチルスルホキシド、1,3ージメチルー2ーイミダゾリジノン等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は2種以上混合して使用することができる。

脱ハロゲン化水素剤としては、例えばトリエチルアミン、ピリジン等の有機塩 50 基類、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム、水酸化ナトリウム 等の無機塩基類を例示することができる。本反応は等モル反応であるので、各反 応剤を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することもでき る。

反応温度は室温乃至使用する不活性溶媒の還流温度下で行うことができ、反応 25 時間は反応規模、反応温度等により一定しないが、数分乃至48時間の範囲で適 宜選択すれば良い。

反応終了後、目的物を含む反応系から常法に従って単離すれば良く、必要に応 じて再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造す ることができる。又、反応系から目的物を単離せずに次の反応工程に供すること も可能である。

(3). 一般式(II)又は(IV)→一般式(I)

本反応で使用する不活性溶媒としては、例えば塩化メチレン、クロロホルム等のハロゲン化炭化水素類、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、フルオロ ベンゼン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化芳香族炭化水素類、 酢酸等の酸類、メタノール、エタノール、プロパノール等のアルコール類を例示することができる。

酸化剤としては、例えばメタクロロ過安息香酸、過酢酸、メタ過ヨウ素酸カリウム、過硫酸水素カリウム(オキソン)、過酸化水素等を例示することができ、 10 その使用量は一般式(II) 又は(IV)で表されるフタルアミド誘導体に対して0. 5~3当量の範囲から適宜選択して使用すれば良い。

反応温度は-50℃~使用する不活性溶媒の沸点域の範囲で行えば良く、反応時間は反応温度、反応規模等により一定しないが、数分乃至24時間の範囲である。

15 反応終了後、目的物を含む反応系から常法に従って単離すれば良く、必要に応じて再結晶、カラムクロマトグラフィー等で精製することにより目的物を製造することができる。

以下に本発明の一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体の代表的な化合物を第1表及び第2表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

20 一般式(I)

25

$$X O N S-R^{1}$$

$$R^{2} Y^{4}$$

$$O R^{3} Y^{1} Y^{2}$$

$$(1)$$

第1事 ($(R^1 = CH_3)$	$p^2 - p^3$	3 — LI	v - r)
現し衣 ($R = CH_{3}$	R = R	$=\Pi$	$\mathbf{v} = \mathbf{r}$

No.	γ 1	γ ²	γ ³	γ ⁴	n	融点 (℃)
1-1	F	Н	CF ₃	Н	0	
1-2	F	F	CF ₃	Н	0	
1-3	F	Н	CF ₃	F	0	
1-4	F	F	CF ₃	F	0	
1-5	F	Cl	CF ₃	Н	0	
1-6	F	Br	CF ₃	Н	0	
1-7	F	Н	C_2F_5	Н	0	173-174
1-8	F	F	C ₂ F ₅	Н	0	
1-9	F	C1	C ₂ F ₅	Н	0	
1-10	F	Br	C ₂ F ₅	Н	0	
1-11	F	Н	OCF ₃	Н	0	
1-12	F	F	OCF ₃	Н	0	
1-13	F	Н	OCF ₃	F	0	
1-14	F	F	OCF ₃	F	0	
1-15	F	C1	0CF ₃	Н	0	
1-16	F	Br	OCF ₃	Н	0	
1-17	F	H	0-(2-C1-4-CF ₃ -Ph)	Н	0	
1-18	F	Н	0-2-(5-CF ₃ -Pyr)	Н	0	
1-19	F	Н	0-2-(3-C1-5-CF ₃ -Pyr)	Н	0	
1-20	C1	Н	CF ₃	Н	0	134-136
1-21	Cl	Н	CF ₃	Н	1	75-79
1-22	Cl	Н	CF ₃	Н	2	128-130
1-23	C1	F	CF ₃	Н	0	
1-24	C1	Н	CF ₃	C1	0	

第1表 (続き)

No.	γ 1	γ ²	γ ³	γ ⁴	n	融点 (℃)
1-25	C1	C1	CF ₃	Н	0	••••••
1-26	Cl	C1	CF ₃	Cl	0	
1-27	C1	Br	CF ₃	Н	0	
1-28	Cl	Н	C_2F_5	н	0	179
1-29	C1	C1	C ₂ F ₅	Н	0	
1-30	Cl	C1	C ₂ F ₅	Cl	0	
1-31	C1	CH ₃	C ₂ F ₅	Н	0	165-167
1-32	C 1		C_2F_5	Н	0	
1-33	C1	Н	CC1 ₃	Н	0	
1-34	Cl	Н	CN	H	0	
1-35	C1	F	CN	Н	0	
1-36	C1	C1	CN	Н	0	
1-37	C1	Br	CN	Н	0	
1-38	C1	Н	4-C1-Ph	Н	0	168-170
1-39	C1	Н .	4-CF ₃ -Ph	Н	0	
1-40	C1	Н	4-0CF ₃ -Ph	Н	0	
1-41	Cl	Н	OCHF ₂	Н	0	
1-42	C1	F.	OCHF ₂	н	0	
1-43	C1	C 1	OCHF 2	H	0	204-206
1-44	Cl	C1	OCHF 2	Н	1	85-88
1-45	Cl.	C1	OCHF 2	Н -	2	213-214
1-46	Cl	Br	OCHF ₂	H	0	
1-47	C1	I	OCHF ₂	Н	0	
1-48	C1	Н	OCC1F ₂	Н	0	176-178
1-49	C1	C1	OCC1F ₂	Н	0	

第1表(続き)

No.	γ ¹	γ ²	γ ³	γ ⁴	n	融点 (℃)
1-50	Cl	Н	OCBrF ₂	Н	0	••••••
1-51	Cl	Cl	OCBrF ₂	Н	0	
1-52	C1	Н	OCF ₃	Н	1	123
1-53	Cl	C1	OCF 3	Н	0	
1-54	C1	Н	OCF ₃	_ C1	0	
1-55	C1	C1	OCF ₃	Cl	0	
1-56	C1	Н	OCF 2 CHF 2	Н	0	
1-57	Cl	C1	OCF 2 CHF 2	Н	0	
1-58	C1	Н	OCF 2 CHC1F	Н	0	177-178
1-59	C1	Cl	OCF 2 CHC1F	Н	0	
1-60	C1	Н	OCF 2 CC1F 2	Н	0	
1-61	C1	Н	OCF 2 CCl 2 F	Н	0	
1-62	C1	Н	OCF ₂ CCl ₃	Н	0	
1-63	C1	Н	OCF 2 CBrF 2	Н	0	
1-64	C1	Н	OCH(CF $_3$) $_2$	Н	0	175-177
1-65	Cl	C1	OCH (CF $_3$) $_2$	Н	0	
1-66	Cl	H	OCF 2 CHFCF 3	Н	0	159-161
1-67	C1	H	OCF 2 CHFCF 3	Н	1	66-71
1-68	Cl.	Н	OCF 2 CHFCF 3	Н	2	105-108
1-69	C1	C1	OCF 2 CHFCF 3	Н	0	187-190
1-70	C1	C1	OCF 2 CHFCF 3	Н	1	75-80
1-71	Cl	C1	OCF 2 CHFCF 3	Н	2	129-131
1-72	Cl	Н	OCF 2 CHFCF 3	Cl	0	
1-73	Cl	Н	OCC1FCC1FCF 3	C1	0	168-170
1-74	C1	Н	OCF 2 CHFOCF 3	Н	0	142-145

第1表 (続き)

	17 # 24					•
No.	γ ¹	γ ²	γ ³	γ4	n	融点 (℃)
1-75	C1	Н	OCF 2 CHFOCF 3	Н	1	73-76
1-76	Cl	Н	OCF 2 CHFOCF 3	Н	2	92-95
1-77	C1	Cl	OCF 2 CHFOCF 3	Н	0	
1-78	C1	Cl	OCF 2 CHFOCF 3	Н	1	
1-79	C1	C1	OCF 2 CHFOCF 3	Н	2	
1-80	C1	Н	OCF 2 CHFOCF 3	C1	0	
1-81	C1	Н	OCF 2 CHFOC 3 F 7 -n	Н	0	120-122
1-82	C1.	H	$0CF_2CHFOC_3F_7-n$	H	1	68-73
1-83	Cl	H	OCF 2 CHFOC 3 F 7 -n	Н	· 2	108-110
1-84	C1	C1	0 CF $_2$ CHF0C $_3$ F $_7$ $-n$	Н	0	135-138
1-85	C1	Cl	OCF 2 CHFOC 3 F 7 -n	Н	1	66-71
1-86	C1	Cl	OCF 2 CHFOC 3 F 7 -n	Н	2	127-129
1-87	C1	Н	OCF 2 CHFOC 3 F 7 -n	Cl	0	
1-88.	Cl	Н	0- (4-C1-Ph)	·H	0	
1-89	C1	Н	0-(2, 4-C1 ₂ -Ph)	Н	0	
1-90	C1	Н	0-(4-CF ₃ -Ph)	Н	0	
1-91	C1	Н	0- (2-C1-4-CF ₃ -Ph)	Н	0	
1-92	C1	Н	0-(2,6-Cl ₂ -4-CF ₃ -Ph)	Н	0	
1-93	C1	H	0-(2, 6-Cl ₂ -3-F-4-CF ₃ -Ph)	Н	0	103-105
1-94	C1	H	0-2-(5-CF ₃ -Pyr)	Н	0	126-128
1-95	C1	Н	0-2-(3-Cl-5-CF ₃ -Pyr)	Н.	0	71-74
1-96	C1	H	0-2-(3-Cl-5-CF ₃ -Pyr)	Н	1	90-94
1-97	C1	Н	0-2-(3-C1-5-CF ₃ -Pyr)	Н	2	111-113
1-98	C1	Cl	0-2-(3-Cl-5-CF ₃ -Pyr)	• Н	0	65-68

第1表 (続き)

7	7 2 30	(1)00 0 /				
No.	γ¹	γ ²	ү 3	y ⁴	n	融点 (℃)
1-99	C1	C1	0-2-(3-C1-5-CF ₃ -Pyr)	Н	1	
1-100	Cl	Cl	0-2-(3-C1-5-CF ₃ -Pyr)	Н	2	102-104
1-101	Cl	Н	SCH 3	Н	0	
1-102	C1	CH ₃	SCH 3	Н	0	
1-103	C1	CF ₃	SCH 3	Н	0	
1-104	Cl	CF ₃	SOCH 3	Н	0	
1-105	C1	${\tt CF}_3$	${ m SO}_2{ m CH}_3$	Н	0	180-183
1-106	Cl	Cl	SCH 3	Н	0	
1-107	C1	Н	SCHF ₂	Н	0	124-125
1-108	C1	Cl	SCHF 2	Н	0	
1-109	C1	Н	SCF ₃	Н	0	157-158
1-110	C1	Н	SOCF ₃	Н	0	
1-111	C1	Н	SO_2CF_3	Н	0	87-89
1-112	C1	Cl	SCF ₃	Н	0	
1-113	C1	C1	SOCF ₃	Н	0	
1-114	Cl	C1	SO ₂ CF ₃	Н	0	
1-115	C1	H	SCC1F ₂	Н	0	
1-116	Cl	H	SOCC1F ₂	Н	0	
1-117	C1	Н	SO ₂ CClF ₂	Н	0	paste
1-118	Cl	Н	SCBrF ₂	Н	0	
1-119	C1	H	SOCBrF ₂	Н	0	
1-120	C1	Н	SOCBr 2F2	Н	0	
1-121	C1	Н	SCF 2 CHF 2	Н	0	
1-122	C1	Н	SO ₂ CF ₂ CHC1F	Н	0	paste

第1表 (続き)

No.	γ ¹	γ ²	γ ³	γ ⁴		五十二 (901)
					n	融点 (℃)
1-123	C1	Н	SCF 2 CHCl 2	Н	0	
1-124	C1	Н	SCF 2 CF 3	Н	0	161-162
1-125	C1	Н	SOCF 2 CF 3	Н	0	
1-126	C1	Н	$SO_2CF_2CF_3$	Н	0	
1-127	C1	Н	SCF 2 CC1F 2	Н	0	
1-128	C1	Н	SCF 2 CCl 2 F	Н	0	
1-129	Cl	H	SCF 2 CCl 3	Н	0	
1-130	Cl	H	SCF ₂ CBrF ₂	Н	0	
1-131	C1	Н	SCF(CF ₃) ₂	Н	0	150-151
1-132	C1	Н	SOCF(CF ₃) ₂	Н	0	•
1-133	C1	Н	${ m SO}_2{ m CF}({ m CF}_3)_2$	н	0	
1-134	Cl	C1	SCF(CF ₃) ₂	Н	0	
1-135	C1	Cl	SOCF(CF ₃) ₂	H	0	
1-136	C1	Cl	${ m SO}_2{ m CF}({ m CF}_3)_2$	Н	0	
1-137	C1	Н	S-(4-C1-Ph)	Н	0	
1-138	C1	Н	S-(2, 4-Cl ₂ -Ph)	Н	0	•
1-139	Cl	H	S-(4-CF ₃ -Ph)	Н	0	
1-140	C1	Н	S-(2-C1-4-CF ₃ -Ph)	Н	0	
1-141	C1	Н	$S-2-(5-CF_3-Pyr)$	Н	0	
1-142	Cl	Н	S-2-(3-C1-5-CF ₃ -Pyr)	Н	0	
1-143	Br	Н	CF ₃	Н	0	
1-144	Br	F	CF ₃	Н	0	
1-145	Br	C1	CF ₃	Н	0	
1-146	Br	Н	C ₂ F ₅	Н	0	170-171

第1表 (続き)

No.	γ 1	γ ²	γ ³	γ ⁴	n	融点 (℃)
1-147	Br	F	C ₂ F ₅	Н	0	***************************************
1-148	Br	C1	C ₂ F ₅	Н	0	
1-149	Br	H	OCF ₃	Н	0	168-169
1-150	Br	Н	OCF ₃	Н	1	116-118
1-151	Br	H	OCF ₃	Н	2	138-139
1-152	Br	F	OCF 3	Н	0	
1-153	Br	C1	OCF ₃	Н	0	
1-154	Br	Cl	0-2-(3-Cl-5-CF ₃ -Pyr)	Н	0	69-72
1-155	I	C1	0-2-(3-Cl-5-CF ₃ -Pyr)	Н	0	114-117

表中、「Pyr」はピリジル基を表す。

第2表 $(Y^2 = Y^4 = H, n = 0)$

					·	•	
No.	R 1	R ²	R ³	Х	γ ¹	γ ³	融点 (℃)
2-1	CH ₃	Н	Н	F	C1	CF ₃	
2-2	${ m CH}_3$	Н	Н	F	Cl	OCF ₃	
2-3	СНЗ	Н	Н	F	Cl	OCF $_2$ CHFCF $_3$	
2-4	CH ₃	Н	Н	F	Cl	OCF $_2$ CHFOCF $_3$	
2-5	CH ₃	H	H	Cl	Cl	CF ₃	
2-6	CH ₃	Н	Н	C1	C1 ·	0CF 3	
2-7	CH ₃	Н	Н	Cl	Cl	OCF ₂ CHFCF ₃	
2-8	CH ₃	Н	H	Cl	C1	OCF 2 CHFOCF 3	
2-9	CH ₃	Н	Н	Br	Cl	CF ₃	
2-10	CH 3	Н	Н	Br	C1	OCF ₃	
2-11	${ m CH}_3$	Н	Н	Br	Cl	OCF 2 CHFCF 3	
2-12	CH ₃	Н	Н	Br	Cl	OCF 2 CHFOCF 3	
2-13	CH ₃	Н	CH ₃	I	C1	OCF ₃	
2-14	CH 3	Н	CH ₃	I	Br	OCF ₃	
2-15	${ m CH}_3$	Н	CH ₃	I	I	OCF ₃	
2-16	СН 3	СНз	Н	I	C1	OCF ₃	
2-17	СН 3	CH ₃	CH ₃	I	Cl	OCF ₃	

第1表中、融点がペースト(Paste)で表される化合物について ^1H-N MRデータを第3表に示す。

₩.	•	#
æ	.≺	20
27.7	v	-2-

N	NMRデータ
No.	¹ H-NMR[CDC1 ₃ /TMS,δ値(ppm)]
	1.46(s.6H), 1.96(s.3H), 2.89(s.2H), 6.00(br.1H)
1-117	7.25(t.1H), 7.68(dd.1H), 7.79(dd.1H), 7.98(dd.1H),
	8.04(d.1H), 8.95(d.1H), 9.19(br.1H)
	1.45(s.6H), 1.96(s.3H), 2.88(s.2H), 6.00(br.1H)
1-122	6.70(m.1H),7.25(t.2H),7.68(dd.1H),7.79(dd.1H)
	7.95(dd.1H), 8.02(d.1H), 8.97(d.1H), 9.18(br.1H)

5 以下に本発明の代表的な実施例を例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

N¹-[2-クロロー4-(トリフルオロメトキシ)フェニル]-N²-(1, 1-ジメチル-2-メチルチオエチル)-3-ヨードフタルアミド1.17g
 (2.0ミリモル)をクロロホルム10mlに溶解して0℃に冷却し、該溶液にメタクロロ過安息香酸0.4g(2.3ミリモル)を加える。1時間室温下攪拌後、反応混合物を10%炭酸カリウム水溶液で洗い、無水硫酸マグネシウムで乾燥し、減圧下に溶媒を留去した。残渣をエーテルで洗浄することにより目的物0.99gを得た。

物性:m. p. 123℃ 収率:82%

実施例 2. $3-3-F-N^1-[2, 3-ジクロロ-4-(1,1,2,3,3,3,3-(1,1)] - N^2-[(1, 1-ジメチル-2 20 -メチルチオ) エチル] フタルアミド (化合物No. 1-66) の製造。$

(2-1). 2, 3-ジクロロー4-アミノフェノール4. 0g(22.5ミリモル)をジメチルスルホキシド20mlに溶解し、トルエン60ml、KOH3. 78gを加え室温で撹拌する。ヘキサフルオロプロペンガスを10分吹き込

む。反応混合物を50mlの水で洗い有機層を無水硫酸マグネシウムで乾燥し、 減圧下に溶媒を留去した。残渣をシリカゲルクロマトグラフィー(ヘキサン : 酢酸エチル= 2:1) で精製することにより2,3-ジクロロー4-(1,1,2, 3,3,3-ヘキサフルオロプロポキシ)アニリン3.05gを得た。収率41% (2-2). N-(1, 1-ジメチル-2-メチルチオエチル)-3-ヨード 5 フタルイソイミド1.8g(4.8ミリモル)をアセトニトリル10mlに溶解 し、2, 3-ジクロロー4-(1,1,2,3,3,3-ヘキサフルオロプロポキ シ) アニリン1. 5g(4.6ミリモル)を加える。トリフルオロ酢酸10mg 加え、2時間室温で撹拌した後、減圧下に溶媒を留去した。残渣をシリカゲルク 10 ロマトグラフィー(ヘキサン : 酢酸エチル = 3:1)で精製することにより目 的物1.36gを得た。

> 物性:m. p. 159-161℃ 収率42%

本発明の一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体を有効成分として含有す る農園芸用殺虫剤は水稲、果樹、野菜、その他の作物及び花卉等を加害する各種 15 農林、園芸、貯穀害虫や衛生害虫或いは線虫等の害虫防除に適しており、例えば リンゴコカクモンハマキ(Adoxophyes orana fasciata)、チャノコカクモンハマ キ (Adoxophyes sp.) 、リンゴコシンクイ(Grapholita inopinata)、ナシヒメ シンクイ(Grapholita molesta)、マメシンクイガ(Leguminivora

glycinivorella)、クワハマキ(Olethreutes mori)、チャノホソガ(Caloptilia 20 thevivora)、リンゴホソガ(Caloptilia zachrysa)、キンモンホソガ (Phyllonorycter ringoniella)、ナシホソガ(Spulerrina astaurota)、モンシロ チョウ(Piers rapae crucivora)、オオタバコガ類(Heliothis sp.)、コドリン ガ(Laspey resia pomonella)、コナガ(Plutella xylostella) 、リンゴヒメシン クイ(Argyresthia conjugella)、モモシンクイガ(Carposina niponensis)、ニカ メイガ(Chilo suppressalis)、コブノメイガ(Cnaphalocrocis medinalis)、チャ マダラメイガ(Ephestia elutella)、クワノメイガ(Glyphodes pyloalis)、サン カメイガ(Scirpophaga incertulas)、イチモンジセセリ(Parnara guttata)、ア ワヨトウ(Pseudaletia separata)、イネヨトウ(Sesamia inferens)、ハスモンヨ トウ(Spodoptera litura) 、シロイチモジヨトウ(Spodoptera egigua) 等の鱗翅

目害虫、フタテンヨコバイ(Macrosteles fascifrons)、ツマグロヨコバイ (Nephotettix cincticeps)、トビイロウンカ(Nilaparvata lugens)、セジロウン カ(Sogatella furcifera) 、ミカンキジラミ(Diaphorina citri)、ブドウコナジ ラミ(Aleurolobus taonabae)、タバココナジラミ(Bemisia tabaci)、オンシツコ ナジラミ(Trialeurodes vaporariorum)、ニセダイコンアブラムシ(Lipaphis erysimi)、モモアカアブラムシ(Myzus persicae)、ツノロウムシ(Ceroplastes ceriferus) 、ミカンワタカイガラムシ(Pulvinaria aurantii) 、ミカンマルカ イガラムシ(Pseudaonidia duplex)、ナシマルカイガラムシ(Comstockaspis perniciosa)、ヤノネカイガラムシ(Unaspis yanonensis)等の半翅目害虫、ネグ 10 サレセンチュウ(Pratylenchus sp.)、ヒメコガネ(Anomala rufocuprea)、マメコ ガネ(Popilla japonica)、タバコシバンムシ(Lasioderma serricorne)、ヒラタ キクイムシ(Lyctus brunneus)、ニジュウヤホシテントウ(Epilachna vigintiotopunctata)、アズキゾウムシ(Callosobruchus chinensis)、ヤサイゾ ウムシ(Listroderes costirostris)、コクゾウムシ(Sitophilus zeamais)、ワタ ミゾウムシ(Anthonomus gradis gradis)、イネミズゾウムシ(Lissorhoptrus 15 oryzophilus) 、ウリハムシ(Aulacophora femoralis) 、イネドロオイムシ (Oulema oryzae) 、キスジノミハムシ(Phyllotreta striolata) 、マツノキクイ ムシ(Tomicus piniperda)、コロラドポテトビートル(Leptinotarsa decemlineata)、メキシカンビーンビートル(Epilachna varivestis)、コーンル ートワーム類(Diabrotica sp.)等の甲虫目害虫、ウリミバエ(Dacus 20 (Zeugodacus) cucurbitae) 、ミカンコミバエ(Dacus (Bactrocera) dorsalis) イネハモグリバエ(Agromyza oryzae) 、タマネギバエ(Delia antiqua) 、タネバ エ(Dalia platura)、ダイズサヤタマバエ(Asphondylis sp.)、イエバエ(Musca domestica)、アカイエカ(Culex pipiens pipiens) 等の双翅目害虫、ミナミネ グサレセンチュウ(Pratylenchus coffeae)、ジャガイモシストセンチュウ 25 (Glabodera rostchiensis)、ネコブセンチュウ(Meloidogyne sp.)、ミカンネセ ンチュウ(Tylenchulus semipenetrans)、ニセネグサレセンチュウ(Aphelenchus avenae)、ハガレセンチュウ(Aphelenchoides ritzemabosi)等のハリセンチュウ 目害虫等に対して強い殺虫効果を有するものである。

本発明の一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体を有効成分とする農園芸用殺虫剤は、水田作物、畑作物、果樹、野菜、その他の作物及び花卉等に被害を与える前記害虫に対して顕著な防除効果を有するので、害虫の発生が予測される時期に合わせて、害虫の発生前又は発生が確認された時点で水田、畑、果樹、野菜、その他の作物、花卉等の種子、水田水、茎葉又は土壌に処理することにより本発明の農園芸用殺虫剤の所期の効果が奏せられるものである。

本発明の農園芸用殺虫剤は、農薬製剤上の常法に従い使用上都合の良い形状に製剤して使用するのが一般的である。

即ち、一般式(I)で表されるフタルアミド誘導体は、これらを適当な不活性 10 担体に、又は必要に応じて補助剤と一緒に適当な割合に配合して溶解、分離、懸 濁、混合、含浸、吸着若しくは付着させて適宜の剤型、例えば懸濁剤、乳剤、液 剤、水和剤、顆粒水和剤、粒剤、粉剤、錠剤、パック剤等に製剤して使用すれば 良い。

本発明で使用できる不活性担体としては固体又は液体の何れであっても良く、 固体の担体になりうる材料としては、例えばダイズ粉、穀物粉、木粉、樹皮粉、 鋸粉、タバコ茎粉、クルミ殻粉、ふすま、繊維素粉末、植物エキス抽出後の残渣、 粉砕合成樹脂等の合成重合体、粘土類(例えばカオリン、ベントナイト、酸性白 土等)、タルク類(例えばタルク、ピロフィライト等)、シリカ類(例えば珪藻 土、珪砂、雲母、ホワイトカーボン(含水微粉珪素、含水珪酸ともいわれる合成 20 高分散珪酸で、製品により珪酸カルシウムを主成分として含むものもある。))、 活性炭、イオウ粉末、軽石、焼成珪藻土、レンガ粉砕物、フライアッシュ、砂、 炭酸カルシウム、燐酸カルシウム等の無機鉱物性粉末、ポリエチレン、ポリプロ ピレン、ポリ塩化ビニリデン等のプラスチック担体、硫安、燐安、硝安、尿素、 塩安等の化学肥料、堆肥等を挙げることができ、これらは単独で若しくは二種以 25 上の混合物の形で使用される。

液体の担体になりうる材料としては、それ自体溶媒能を有するものの他、溶媒能を有さずとも補助剤の助けにより有効成分化合物を分散させうることとなるものから選択され、例えば代表例として次に挙げる担体を例示できるが、これらは単独で若しくは2種以上の混合物の形で使用され、例えば水、アルコール類(例

えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール等)、ケトン類(例えばアセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等)、エーテル類(例えばエチルエーテル、ジオキサン、セロソルブ、ジプロピルエーテル、テトラヒドロフラン等)、脂肪族炭化水素類(例えばケロシン、鉱油等)、芳香族炭化水素類(例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、アルキルナフタレン等)、ハロゲン化炭化水素類(例えばジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素、塩素化ベンゼン等)、エステル類(例えば酢酸エチル、ジイソプピルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等)、アミド類(例えばジメチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等)、ニトリル類(例えばアセトニトリル等)、ジメチルスルホキシド類等を挙げることができる。

他の補助剤としては次に例示する代表的な補助剤をあげることができ、これらの補助剤は目的に応じて使用され、単独で、ある場合は二種以上の補助剤を併用し、又ある場合には全く補助剤を使用しないことも可能である。

有効成分化合物の乳化、分散、可溶化及び/又は湿潤の目的のために界面活性 剤が使用され、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレ ンアルキルアリールエーテル、ポリオキシエチレン高級脂肪酸エステル、ポリオ キシエチレン樹脂酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタンモノラウレート、

20 ポリオキシエチレンソルビタンモノオレエート、アルキルアリールスルホン酸塩、 ナフタレンスルホン酸縮合物、リグニンスルホン酸塩、高級アルコール硫酸エス テル等の界面活性剤を例示することができる。

又、有効成分化合物の分散安定化、粘着及び/又は結合の目的のために、次に 例示する補助剤を使用することもでき、例えばカゼイン、ゼラチン、澱粉、メチ ルセルロース、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアルコ ール、松根油、糠油、ベントナイト、リグニンスルホン酸塩等の補助剤を使用す ることもできる。

固体製品の流動性改良のために次に挙げる補助剤を使用することもでき、例えばワックス、ステアリン酸塩、燐酸アルキルエステル等の補助剤を使用できる。

懸濁性製品の解こう剤として、例えばナフタレンスルホン酸縮合物、縮合燐酸塩 等の補助剤を使用することもできる。

消泡剤としては、例えばシリコーン油等の補助剤を使用することもできる。 防腐剤としては、1,2-ベンズイソチアゾリン-3-オン、パラクロロメタ 5 キシレノール、パラオキシ安息香酸ブチル等も添加することが出来る。

更に必要に応じて機能性展着剤、ピペロニルブトキサイド等の代謝分解阻害剤等の活性増強剤、プロピレングリコール等の凍結防止剤、BHT等の酸化防止剤、紫外線吸収剤等その他の添加剤も加えることが可能である。

有効成分化合物の配合割合は必要に応じて加減することができ、農園芸用殺虫 10 剤100重部中、0.01~90重量部の範囲から適宜選択して使用すれば良く、 例えば粉剤又は粒剤とする場合は0.01~50重量%、又乳剤又は水和剤とす る場合も同様0.01~50重量%が適当である。

本発明の農園芸用殺虫剤は各種害虫を防除するためにそのまま、又は水等で適 宜希釈し、若しくは懸濁させた形で病害防除に有効な量を当該害虫の発生が予測 15 される作物若しくは発生が好ましくない場所に適用して使用すれば良い。

本発明の農園芸用殺虫剤の使用量は種々の因子、例えば目的、対象害虫、作物の生育状況、害虫の発生傾向、天候、環境条件、剤型、施用方法、施用場所、施用時期等により変動するが、有効成分化合物として10アール当たり0.001g~10kg、好ましくは0.01g~1kgの範囲から目的に応じて適宜選択すれば良い。

本発明の農園芸用殺虫剤は、更に防除対象病害虫、防除適期の拡大のため、或いは薬量の低減をはかる目的で他の農園芸用殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤、生物農薬等と混合して使用することも可能であり、又、使用場面に応じて除草剤、植物成長調節剤、肥料等と混合して使用することも可能である。

25 かかる目的で使用する他の農園芸殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤としては、例えばエチオン、トリクロルホン、メタミドホス、アセフェート、ジクロルボス、メビンホス、モノクロトホス、マラチオン、ジメトエート、ホルモチオン、メカルバム、バミドチオン、チオメトン、ジスルホトン、オキシデプロホス、ナレッド、メチルパラチオン、フェニトロチオン、シアノホス、プロパホス、フェンチオン、

プロチオホス、プロフェノホス、イソフェンホス、テメホス、フェントエート、 ジメチルビンホス、クロルフェビンホス、テトラクロルビンホス、ホキシム、イ ソキサチオン、ピラクロホス、メチダチオン、クロロピリホス、クロルピリホス ・メチル、ピリダフェンチオン、ダイアジノン、ピリミホスメチル、ホサロン、 5 ホスメット、ジオキサベンゾホス、キナルホス、テルブホス、エトプロホス、カ ズサホス、メスルフェンホス、DPS(NK-0795)、ホスホカルブ、フェ ナミホス、イソアミドホス、ホスチアゼート、イサゾホス、エナプロホス、フェ ンチオン、ホスチエタン、ジクロフェンチオン、チオナジン、スルプロホス、フ ェンスルフォチオン、ジアミダホス、ピレトリン、アレスリン、プラレトリン、 10 レスメトリン、ペルメトリン、テフルトリン、ビフェントリン、フェンプロパト リン、シペルメトリン、アルファシペルメトリン、シハロトリン、ラムダ・シハ ロトリン、デルタメトリン、アクリナトリン、フェンバレレート、エスフェンバ レレート、フルシトリネート、フルバリネート、シクロプロトリン、エトフェン プロックス、ハルフェンプロックス、シラフルオフェン、フルシトリネート、フ 15 ルバリネート、メソミル、オキサミル、チオジカルブ、アルジカルブ、アラニカ ルブ、カルタップ、メトルカルブ、キシリカルブ、プロポキスル、フェノキシカ ルブ、フェノブカルブ、エチオフェンカルブ、フェノチオカルブ、ビフェナゼー ト、BPMC、カルバリル、ピリミカーブ、カルボフラン、カルボスルファン、 フラチオカルブ、ベンフラカルブ、アルドキシカルブ、ジアフェンチウロン、ジ フルベンズロン、テフルベンズロン、ヘキサフルムロン、ノバルロン、ルフェヌ ロン、フルフェノクスロン、クロルフルアズロン、酸化フェンブタスズ、水酸化 トリシクロヘキシルスズ、オレイン酸ナトリウム、オレイン酸カリウム、メトプ レン、ハイドロプレン、ビナパクリル、アミトラズ、ジコホル、ケルセン、クロ ルベンジレート、フェニソブロモレート、テトラジホン、ベンスルタップ、ベン

ゾメート、テブフェノジド、メトキシフェノジド、クロマフェノジド、プロパル ギット、アセキノシル、エンドスルファン、ジオフェノラン、クロルフェナピル、 フェンピロキシメート、トルフェンピラド、フィプロニル、テブフェンピラド、 トリアザメート、エトキサゾール、ヘキシチアゾクス、硫酸ニコチン、ニテンピ ラム、アセタミプリド、チアクロプリド、イミダクロプリド、チアメトキサム、

WO 02/088074

クロチアニジン、ニジノテフラン、フルアジナム、ピリプロキシフェン、ヒドラメチルノン、ピリミジフェン、ピリダベン、シロマジン、TPIC (トリプロピルイソシアヌレート)、ピメトロジン、クロフェンテジン、ブプロフェジン、チオシクラム、フェナザキン、キノメチオネート、インドキサカルブ、ポリナクチン複合体、ミルベメクチン、アバメクチン、エマメクチン・ベンゾエート、スピノサッド、BT (バチルス チューリンゲンシス)、アザディラクチン、ロテノン、ヒドロキンプロピルデンプン、塩酸レバミゾール、メタム・ナトリウム、酒石酸モランテル、ダゾメット、トリクラミド、バストリア、モナクロスポリウム・フィマトパガム等の農園芸殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤を例示することができ、

- 10 同様の目的で使用する農園芸用殺菌剤としては、例えば硫黄、石灰硫黄合剤、塩 基性硫酸銅、イプロベンホス、エディフェンホス、トルクロホス・メチル、チラ ム、ポリカーバメイト、ジネブ、マンゼブ、マンコゼブ、プロピネブ、チオファ ネート、チオファネートメチル、ベノミル、イミノクタジン酢酸塩、イミノクタ ジンアルベシル酸塩、メプロニル、フルトラニル、ペンシクロン、フラメトピル、
- 15 チフルザミド、メタラキシル、オキサジキシル、カルプロパミド、ジクロフルアニド、フルスルファミド、クロロタロニル、クレソキシム・メチル、フェノキサニル (NNF-9425)、ヒメキサゾール、エクロメゾール、フルオルイミド、プロシミドン、ビンクロゾリン、イプロジオン、トリアジメホン、トリフルミゾール、ビテルタノール、トリフルミゾール、イプコナゾール、フルコナゾール、
- プロピコナゾール、ジフェノコナゾール、ミクロブタニル、テトラコナゾール、ヘキサコナゾール、テブコナゾール、イミベンコナゾール、プロクロラズ、ペフラゾエート、シプロコナゾール、イソプロチオラン、フェナリモル、ピリメタニル、メパニピリム、ピリフェノックス、フルアジナム、トリホリン、ジクロメジン、アゾキシストロビン、チアジアジン、キャプタン、プロベナゾール、アシベンゾフラルーSーメチル(CGA-245704)、フサライド、トリシクラゾール、ピロキロン、キノメチオネート、オキソリニック酸、ジチアノン、カスガマイシン、バリダマイシン、ポリオキシン、ブラストサイジン、ストレプトマイシン等の農園芸用殺菌剤を例示することができ、同様に除草剤としては、例えば

グリホサート、スルホセート、グルホシネート、ビアラホス、ブタミホス、エス

プロカルブ、プロスルホカルブ、ベンチオカーブ、ピリブチカルブ、アシュラム、リニュロン、ダイムロン、ベンスルフロンーメチル、シクロスルファムロン、シノスルフロン、ピラゾスルフロンエチル、アジムスルフロン、イマゾスルフロン、テニルクロール、アラクロール、プレチラクロール、クロメプロップ、エトベン5 ザニド、メフェナセット、ペンディメタリン、ビフェノックス、アシフルオフェン、ラクトフェン、シハロホップーブチル、アイオキシニル、ブロモブチド、アロキシジム、セトキシジム、ナプロパミド、インダノファン、ピラゾレート、ベンゾフェナップ、ピラフルフェン・エチル、イマザピル、スルフェントラゾン、カフェンストロール、ベントキサゾン、オキサゾアゾン、パラコート、ジクワッ10 ト、ピリミノバック、シマジン、アトラジン、ジメタメトリン、トリアジフラム、ベンフレセート、フルチアセット・メチル、キザロホップ・エチル、ベンタゾン、過酸化カルシウム等の除草剤を例示することができる。

又、生物農薬として、例えば核多角体ウイルス(Nuclear polyhedrosis virus、 NPV)、顆粒病ウイルス(Granulosis virus、GV)、細胞質多角体病ウイルス (Cytoplasmic polyhedrosis virus、CPV) 、昆虫ポックスウイルス 15 (Entomopox virus 、EPV) 等のウイルス製剤、モノクロスポリウム・フィマト パガム (Monacrosporium phymatophagum) 、スタイナーネマ・カーポカプサエ (Steinernema carpocapsae) 、スタイナーネマ・クシダエ (Steinernema kushidai)、パスツーリア・ペネトランス (Pasteuria penetrans) 等の殺虫又 は殺線虫剤として利用される微生物農薬、トリコデルマ・リグノラン 20 (Trichoderma lignorum)、アグロバクテリウウム・ラジオバクター (Agrobacterium radiobactor)、非病原性エルビニア・カロトボーラ (Erwinia carotovora) 、バチルス・ズブチリス (Bacillus subtilis) 等の殺 菌剤として使用される微生物農薬、ザントモナス・キャンペストリス (Xanthomonas campestris) 等の除草剤として利用される生物農薬などと混合し 25 て使用することにより、同様の効果が期待できる。

更に、生物農薬として例えばオンシツツヤコバチ (Encarsia formosa)、コレマンアブラバチ (Aphidius colemani)、ショクガタマバエ (Aphidoletes aphidimyza)、イサエアヒメコバチ (Diglyphus isaea)、ハモグリコマユバチ

(Dacnusa sibirica)、チリカブリダニ (Phytoseiulus persimilis)、ククメリスカブリダニ (Amblyseius cucumeris)、ナミヒメハナカメムシ (Orius sauteri) 等の天敵生物、ボーベリア・ブロンニアティ (Beauveria brongniartii) 等の微生物農薬、(Z) -10-テトラデセニル=アセタート、

- 5 (E, Z) -4, 10-テトラデカジニエル=アセタート、(Z) -8-ドデセニル=アセタート、(Z) -11-テトラデセニル=アセタート、(Z) -13 -イコセン-10-オン、(Z) -8-ドデセニル=アセタート、(Z) -11 -テトラデセニル=アセタート、(Z) -13-イコセン-10-オン、14-メチル-1-オクタデセン等のフェロモン剤と併用することも可能である。
- 10 以下に本発明の代表的な製剤例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

尚、製剤例中、部とあるのは重量部を示す。

製剤例1.

第1表又は第2表記載の化合物
 10部
 15 キシレン
 バーメチルピロリドン
 ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと
 アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物
 以上を均一に混合溶解して乳剤とする。

20 製剤例2.

第1表又は第2表記載の化合物3部クレー粉末82部珪藻土粉末15部以上を均一に混合粉砕して粉剤とする。

25 製剤例3.

第1表又は第2表記載の化合物5部ベントナイトとクレーの混合粉末90部リグニンスルホン酸カルシウム5部

以上を均一に混合し、適量の水を加えて混練し、造粒、乾燥して粒剤とする。

製剤例4.

第1表又は第2表記載の化合物

20部

カオリンと合成高分散珪酸

75部

ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと

5 アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物

5部

以上を均一に混合粉砕して水和剤とする。

試験例1.コナガ(Plutella xylostella)に対する殺虫試験

ハクサイ実生にコナガの成虫を放飼して産卵させ、放飼2日後に産下卵の付いたハクサイ実生を第1表又は第2表記載の化合物を有効成分とする薬剤を所定の割合に希釈した薬液に約30秒間浸漬し、風乾後に25℃の恒温室に静置した。薬液浸漬6日後に孵化虫数を調査し、下記の式により死虫率を算出し、下記基準に従って判定を行った。1区10頭3連制。

無処理区孵化虫数-処理区孵化虫数

補正死虫率(%)=---

---×100

15

無処理区孵化虫数

判定基準. A···死虫率100%

B・・・死虫率99%~90%

C···死虫率89%~80%

D・・・死虫率79%~50%

20

E・・・死虫率49%~ 0%

結果を第4表に示す。

試験例2. ハスモンヨトウ(Spodoptera litura)に対する殺虫試験

第1表又は第2表記載の化合物を有効成分とする薬剤を所定の割合に希釈した 薬液にキャベツ薬片(品種:四季穫)を約30秒間浸漬し、風乾後に直径9cm 25 のプラスチックシャーレに入れ、ハスモンヨトウ2令幼虫を接種した後、蓋をし て25℃の恒温室に静置した。接種8日後に生死虫数を調査し、下記の式により 死虫率を算出し、判定基準は試験例1に従って行った。1区10頭3連制。

無処理区生存虫数-処理区生存虫数

補正死虫率 (%) = ----×100

無処理区生存虫数

結果を第4表に示す。

5 第4表

濃度(ppm)	試験例1	試験例2
50	A	A
5	A	A
50	A	A
5	A	С
50	A	A
5	A	С
50	A	A
5	A	E
50	A	A
5	A	A
50	A	A
5 .	A	E
50	A	A
5	A	E
50	A	A
5	A	A
50	A	A
5	A	A
50	A	A
5	E	Е
50	A	A
5	A	A
50	A	· A
5	Е	E
	50 5 50 5 50 5 50 5 50 5 50 5 50 5 50	50 A 5 A 50 A 50 A 50 A

第4表

供試化合物No.	濃度(ppm)	試験例1	試験例2
1-67	50	A	A
	5	A	E
1-68	50	A	A
	5	A	Ē
1-69	50	Α	A
	5	A	E
1-70	50	A	A
	5	A	E
1-71	50	A	A
	5	A	E
1-73	50	A	A
	5	E .	E
1-74	50	A	A
	5	Α	Е
1-75	50	A	A
<u> </u>	5	A	E
1-76	50	A	A
	5 ,	A	Е
1-81	50	A	A
•	5	A	A
1-82	50	A	Α
	5	A	С
1-83	50	A	. А
	5	A	A

第4表

供試化合物No.	濃度(ppm)	試験例1	試験例2
1-84	50	۸	A
• • •	5	E	E
1-85	50	A	A
1	5	A	E
1-86	50	A	A
	5	A	D
1-93	50	A	С
	5	A	E
1-94	50	A	A
	5	A	E
1-95	50	A	A
	5	A	E
1-96	50	A	A
	5	Α.	E
1-97	50	A	A
	5 .	A	E
1-98	50	A	A
	5	A	E
1-100	50	A	A
	5	A	E
1-107	50	A	E
	5	A	Е
1-111	50	A	Α
*	5	A	E

5 生死虫数を調査し、下記の式により死虫率を算出した。1区10頭3連制

無処理区生存虫数-処理区生存虫数

補正死虫率(%) = ---×100

無処理区生存虫数

比較試験化合物は特開2001-131141号公報に記載の下記化合物を使 10 用した。

化合物A: $N^1 - [2-\rho u u - 4 - (トリフルオロメトキシ) フェニル] - N^2 - (1, 1-ジメチル-2-メチルチオエチル) - 3 - ヨードフタルアミド (化合物No. 225)$

化合物B: N^1 -[2-クロロー4-(トリフルオロメトキシ)フェニル]-3 15 -ヨードー N^2 -(1, 1-ジメチル-2-メチルスルホニルエチル)フタルアミド(化合物No. 226)

結果を第5表に示す。

第5表

供試化合物	濃度(ppm)	死虫率(%)
化合物 1-51	500	100
	5 0	100
	5	100
化合物 A	500	100
	5 0	100
	. 5	5
化合物 B	500	100
	5 0	100
	5	0

20 比較試験例 2. カンランの土壌処理によるハスモンヨトウ (Spodoptera litura) に対する殺虫試験

化合物1-51を製剤例に準じて作成した粒剤をカンラン(品種:YR晴徳)

定植時に植え穴処理した。定植11日後に葉を切り取り、プラスチックシャーレに入れ、ハスモンヨトウ1令幼虫20頭を接種した後、蓋をして25℃の恒温室に静置した。接種3日後に生死虫数を調査し、比較試験例1と同様にして死虫率を算出した。

5 結果を第6表に示す。

第6表

		死 虫 率 (%)	
供試化合物	上位第1葉	上位第2葉	上位第3葉
化合物1-51	9 0	100	100
化合物 A	0	9 5	1 0 0
化合物 B	0	5 0	100
無処理区	0	0	0

請求の範囲

1. 一般式(I)

5

10

(式中、 R^1 、 R^2 及び R^3 は同一又は異なっても良く、水素原子、 C_1 - C_6 ア ルキル基、 C_3 - C_6 アルケニル基又は C_3 - C_6 アルキニル基を示し、X及びY¹は 同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、Y²及びY⁴は同一又は異なって も良く、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、C1-C6アルキル基、ハロC1-C6 アルキル基、C₁-C₆アルコキシ基、ハロ C₁-C₆アルコキシ基、ハロ C₁-C₆ア 15 ルキルチオ基、ハロ C₁-C₆アルキルスルフィニル基又はハロ C₁-C₆アルキル スルホニル基を示し、Y³はシアノ基、C1-C6アルキル基、ハロC1-C2アルキル 基、C1-C6アルコキシ基、ハロ C1-C6アルコキシ基、 ハロ C1-C6アルコキシ ハロ C1-C6アルコキシ基、C1-C6アルキルチオ基、ハロ C1-C6アルキルチオ 20 基、 C_1 - C_6 アルキルスルフィニル基、ハロ C_1 - C_6 アルキルスルフィニル基、 C_1 -C₆アルキルスルホニル基、ハロ C₁-C₆アルキルスルホニル基、同一又は異な っても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C₁-C₆アルキル基、ハロC₁ $-C_6$ アルキル基、 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択さ れる1以上の置換基を有する置換フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲ 25 ン原子、シアノ基、ニトロ基、 C₁-C₆アルキル基、ハロ C₁-C₆アルキル基、 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択される1以上の置換 基を有する置換フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ 基、ニトロ基、 C₁-C₆アルキル基、ハロ C₁-C₆アルキル基、 C₁-C₆アルコキ シ基又はハロ C₁-C₆アルコキシ基から選択される1以上の置換基を有する置換

ピリジルオキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_1 - C_6 アルキル基、ハロ C_1 - C_6 アルキル基、 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、又は、同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、

- C_1 - C_6 アルキル基、ハロ C_1 - C_6 アルキル基、 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択される 1 以上の置換基を有する置換ピリジルチオ基を示し、nは 0 ~ 2 の整数を示す。但し、 R^2 及び R^3 が同時に水素原子を示し、 Y^1 が塩素原子を示し、 Y^2 及び Y^4 が同時に水素原子を示し、 Y^3 がトリフルオロメトキシ基を示す場合、 R^1 がメチル基を示し、X がフッ素原子、塩素原子
- 10 又は臭素原子を示す場合を除く。又、R 2 及びR 3 が同時に水素原子を示し、Y 1 が塩素原子を示し、Y 2 及びY 4 が水素原子を示し、Y 3 がトリフルオロメトキシ基を示し、nが0又は2の整数を示す場合、R 1 がメチル基又はエチル基を示し、Xがヨウ素原子の場合を除く。)

で表されるフタルアミド誘導体。

- 2. R^1 、 R^2 及び R^3 が同一又は異なっても良く、水素原子又は C_1 - C_6 アルキル基を示し、X及び Y^1 が同一又は異なっても良いハロゲン原子を示し、 Y^2 及び Y^4 が同一又は異なっても良く、水素原子又はハロゲン原子を示し、 Y^3 がハロ C_1 - C_2 アルキル基、ハロ C_2 - C_6 アルコキシ基、 ハロ C_1 - C_6 アルコキシ ハロ C_1 - C_6 アルコキシ基、ハロ C_1 - C_6 アルコキシ基、ハロ C_1 - C_6 アルキルチオ基、ハロ C_1 - C_6 アルキル スルフィニル基、ハロ C_1 - C_6 アルキルスルホニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_1 - C_6 アルキシ基から選択される 1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、又は同一若しくは異なっても良く、ハロゲン原子、シアノ基、ニトロ基、 C_1 - C_6 アルキル基、ハロ C_1 - C_6 アルキル基、
- 25 C_1 - C_6 アルコキシ基又はハロ C_1 - C_6 アルコキシ基から選択される 1 以上の置換 基を有する置換ピリジルオキシ基を示し、n が 0 ~ 2 の整数を示す請求項 1 記載 のフタルアミド誘導体。
 - 3. 請求項1又は2いずれか1項記載のフタルアミド誘導体を有効成分として 含有することを特徴とする農園芸用殺虫剤。

WO 02/088074 PCT/JP02/04171

33

4. 請求項3記載の農園芸用殺虫剤の有効量を、有用植物から害虫を防除するため、対象植物又は土壌に処理することを特徴とする農園芸用殺虫剤の使用方法。

5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04171

	ASSIFICATION OF SUBJECT MATTER			
In	t.Cl ⁷ C07C323/42, 317/28, 317/4	0, C07D213/64, A01N37/22	2, 41/10,	
	43/40			
A 1º				
Accordi	ng to International Patent Classification (IPC) or to both i	national classification and IPC		
	LDS SEARCHED			
Minimu	m documentation searched (classification system follower	by classification symbols)		
In	t.Cl ⁷ C07C323/00, 317/00, C07D2	13/00, A01N37/00, 41/00,	43/00	
Docume	ntation searched other than minimum documentation to the	ne extent that such documents are included	in the fields seamhed	
Docume	mation searched other than infilming documentation to the	le extent mat such documents are included	in the fields sealched	
	ic data base consulted during the international search (na	ne of data base and, where practicable, sear	ch terms used)	
RE	GISTRY(STN), CA(STN)		·	
C. DO	CUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	 Citation of document, with indication, where a 	ppropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	
X	EP 1006107 A2 (Nihon Nohyak	u Co.),	1-4	
	07 June, 2000 (07.06.00),			
	& JP 2001-131141 A			
	i i			
Α			1-4	
	02 June, 1999 (02.06.99),			
	& JP 11-240857 A	1		
	·			
		į		
		ļ		
	the designation of Per C	See patent family annex.	-	
□ "	rther documents are listed in the continuation of Box C.	<u> </u>		
	Special categories of cited documents: "T" later document published after the international filing date or			
	ument defining the general state of the art which is not sidered to be of particular relevance	priority date and not in conflict with the understand the principle or theory under		
"E" car	earlier document but published on or after the international filing "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be		laimed invention cannot be	
	date considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone			
cite	cited to establish the publication date of another citation or other "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be			
	special reason (as specified) considered to involve an inventive step when the document is			
	2" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art			
	'P' document published prior to the international filing date but later "&" document member of the same patent family			
than the priority date claimed Date of the actual completion of the international country. Date of mailing of the international country.				
	Date of the actual completion of the international search 30 July, 2002 (30.07.02) Date of mailing of the international search report 13 August, 2002 (13.08.02)			
50	30 July, 2002 (30.07.02) 13 August, 2002 (13.08.02)			
	d mailing address of the ISA/	Authorized officer		
Ja	panese Patent Office			
Facsimile	: No.	Telephone No.		
Facsimile No.		1 *		

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl' C07C323/42, 317/28, 317/40, C07D213/64 A01N37/22, 41/10, 43/40

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C1' C07C323/00, 317/00, C07D213/00 A01N37/00, 41/00, 43/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

REGISTRY (STN), CA (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Х	EP 1006107 A2 (Nihon Nohyaku Co.) 2000. 06. 07 & JP 2001-131141 A	1-4
A	EP 919542 A2(Nihon Nohyaku Co.)1999.06.02 & JP 11-240857 A	1-4

□ C欄の続きにも文献が列挙されている。

□ パテントファミリーに関する別紙を参照。

- * 引用文献のカテゴリー
- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献 (理由を付す)
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に官及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

- の日の後に公表された文献
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 30.07.02 国際調査報告の発送日 13.08.02 国際調査機関の名称及びあて先 特許庁審査官(権限のある職員) 前田 憲彦 印 野便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 電話番号 03-3581-1101 内線 3443

This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☐ BLACK BORDERS
☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
☐ FADED TEXT OR DRAWING
☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

☐ OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.